

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2000年12月14日 (14.12.2000)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 00/74913 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B29B 17/00, C08J 11/10
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/03712
- (22) 国際出願日: 2000年6月7日 (07.06.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平11/161079 1999年6月8日 (08.06.1999) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 株式会社 豊田中央研究所 (KABUSHIKI KAISHA TOYOTA CHUO KENKYUSHO) [JP/JP]; 〒480-1192 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1
- 豊田合成株式会社 (TOYODA GOSEI CO., LTD.) [JP/JP]; 〒452-8564 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畠1番地 Aichi (JP). トヨタ自動車株式会社 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒471-8572 愛知県豊田市トヨタ町1番地 Aichi (JP).

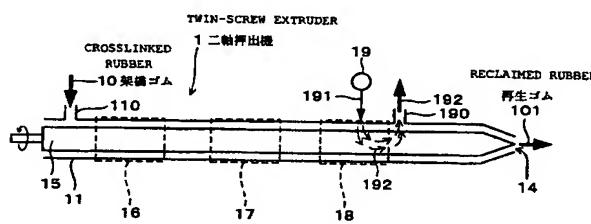
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 松下光正 (MATSUSHITA, Mitsumasa) [JP/JP]. 毛利 誠 (MORI, Makoto) [JP/JP]. 岡本浩孝 (OKAMOTO, Hirotaka) [JP/JP]. 福森健三 (FUKUMORI, Keizo) [JP/JP]. 佐藤 紀夫 (SATO, Norio) [JP/JP]; 〒480-1192 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1 株式会社 豊田中央研究所内 Aichi (JP). 吉田 徹 (YOSHIDA, Toshi) [JP/JP]; 〒467-0008 愛知県名古屋市瑞穂区村上町2-11 Aichi (JP). 福田政仁 (FUKUTA, Masahito) [JP/JP]; 〒462-0015 愛知県名古屋市北区中味鋤3丁目916 102号

[続葉有]

(54) Title: METHOD OF RECLAMING CROSSLINKED RUBBER AND MOLDED ARTICLE OF RECLAIMED RUBBER

(54) 発明の名称: 架橋ゴムの再生方法及び再生ゴム成形品



(57) Abstract: A method of crosslinked-rubber reclamation which is less apt to cause a quality deterioration by the generation of a decomposition product. The method comprises: incorporating a degassing carrier into a crosslinked rubber (10) in a reclamation step in which a shear force is applied to the crosslinked rubber (10) to reclaim it and/or in a later step; and removing the degassing carrier together with a decomposition product which has generated in the crosslinked rubber (10). The molded article is produced by crosslinking again the reclaimed rubber thus-obtained.

(57) 要約:

本発明は、分解生成物の発生による品質の低下が発生し難い架橋ゴムの再生方法及び再生ゴム成形品を提供することを目的とする。

本発明は、架橋ゴム10に剪断力を加えて再生する再生工程または/及び以後の工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴム10における分解生成物を除去する。また、これにより得られた再生ゴムを再架橋することにより作製された再生ゴム成形品である。

WO 00/74913 A1



Aichi (JP). 本多秀亘 (HONDA, Hidemitsu) [JP/JP]; 〒491-0037 愛知県一宮市貴船2丁目12の13 607号 Aichi (JP). 中島克巳 (NAKASHIMA, Katsumi) [JP/JP]; 〒491-0135 愛知県一宮市光明寺字北道手269-4 Aichi (JP). 渡辺 有 (WATANABE, Tamotsu) [JP/JP]; 〒492-8268 愛知県稻沢市朝府町6-17 Aichi (JP). 鈴木康之 (SUZUKI, Yasuyuki) [JP/JP]. 大脇雅夫 (OWAKI, Masao) [JP/JP]; 〒471-8572 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 弁理士 高橋祥泰, 外 (TAKAHASHI, Yoshiyasu et al. et al.); 〒450-0002 愛知県名古屋市中村区名駅3丁目26番19号 名駅永田ビル Aichi (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, JP, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

架橋ゴムの再生方法及び再生ゴム成形品

5 技術分野

本発明は、架橋ゴムの再生方法及び再生ゴム成形品に関する。

背景技術

従来、タイヤ廃材等のゴム成形品の廃棄物、ゴム成形品の製造工程において生じる端材、不良品等に熱と剪断力を加えて再生ゴムとなす再生方法が知られている。

熱と剪断力とが架橋ゴムを構成するゴム分子間の架橋点を切断するため、上記再生方法によれば未架橋と似た状態の再生ゴムが得られる。

このような再生ゴムを単独で再架橋する、または／及び再生ゴムと新品の未架橋ゴムとを混合して再架橋することで再生ゴム成形品となり、架橋ゴムがリサイクルできる。

ところである種の架橋ゴムは再生中に分解生成物が発生し、該分解生成物により品質低下等が発生することがある。そして、従来の再生方法では分解生成物による問題に対処することが困難であった。

具体的に説明すると、ある種の架橋ゴムは再生中に臭気ガスが発生するものがある。このような架橋ゴムを再生する場合には、例えば（1）特開平6-210633号のように、臭気ガスを燃焼式脱臭装置で燃焼脱臭して外気に放出する方法が提示されている。また、（2）特願平9-308951号のように、臭気ガスや再生ゴム中の臭気成分を加熱炉を用いた加熱で連続的に除去する方法が提示されている。

しかし、（1）法では再生中に外気に放出された臭気ガスを除去することは

できても、再生ゴム中に残存した臭気ガスを除去することができなかつた。このため、再生ゴムを再架橋する際に臭気が発生したり、再架橋された再生ゴム成形品に臭気が発生する等の問題があつた。

また（2）法でも臭気ガスの除去が不充分であり、特に密閉された空間（例
5 えば室内等）で使用する製品に使用可能な再生ゴムを得ることは困難な場合
があつた。また、加熱炉を利用するため、熱により変質し易い架橋ゴムに対する適用は困難であつた。

また、上記とは異なる具体例として、ある種の架橋ゴムは再生中に生成した分解生成物と再生途中にある架橋ゴムとが再反応し、再生ゴムの品質が低
10 下する。また、分解生成物が早期架橋の原因となり、スコーチ特性の低下、保存安定性の低下を発生させることがある。

本発明は、かかる従来の問題点に鑑みてなされたもので、分解生成物の発生による品質の低下が発生し難い架橋ゴムの再生方法及び再生ゴム成形品を提供しようとするものである。

15

発明の開示

本発明は、架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程または／及び以後の工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴムにおける分解生成物を除去することを特徴とする架橋ゴムの再生方法にある。
20

本発明において最も注目すべきことは、導入した脱揮キャリアーと共に分解生成物を除去することにある。

これにより、分解生成物が除去され、再生途中の架橋ゴムや再生ゴムに分解生成物が残留し難くなる。よって、分解生成物による再生ゴムの品質低下
25 や分解生成物による架橋ゴムの再生の阻害を防止することができる。

以上のごとく、本発明によれば、分解生成物の発生による品質の低下が発

生し難い架橋ゴムの再生方法を提供することができる。

上記脱揮キャリアーの導入及び脱揮キャリアーと共に分解生成物を除去するプロセスは架橋ゴムの再生途中で行なうことが好ましい（実施形態例 6 参照）。これにより本発明の効果を確実に得ることができる。

- 5 後述するごとく架橋ゴムに剪断力を加えることで架橋点の切断が始まるが、分解生成物も架橋点の切断と略同時期に発生する。よって、分解生成物が未だ発生していない時期、架橋ゴムの架橋点の切断が始まる前に脱揮キャリアーの導入と除去（脱揮処理）を行なっても本発明の効果は得られない。そのため、後述の可塑化工程及び／又は混練工程よりも後の工程で行う必要がある。
10 また、脱揮処理を繰り返してもよい。

上記分解生成物としては、例えば臭気成分が挙げられる。

- 架橋ゴムの中には再生中に臭気ガスが発生するものがある。このような架橋ゴムは上述したごとく従来方法では除去困難だった。本発明にかかる再生方法を適用することで、臭気成分を除去できるため、再生時や得られた再生ゴムを再架橋して再生ゴム成形品を得る（ロール精練等）際の作業環境を改善することができる。

また、再生ゴムを再生ゴム成形品とした場合、該再生ゴム成形品の臭気を低減することができ、製品価値を高めることができる。

- また、再生ゴム成形品において、再生ゴムの配合割合を増大することができ、リサイクル効率を高めることができる。

また、再生ゴムの加工性が高まり、架橋特性の向上を図ることができる。

また、再生ゴムより得た再生ゴム成形品の力学的特性の向上を図ることができ。また、再生そのものを促進することもできる。

- 上述のような臭気ガスが発生する架橋ゴムとしては、硫黄加硫の E P D M
25 (エチレンプロピレンジエンターポリマー), N R / S B R (天然ゴムとスチレンブタジエンゴムとのブレンドゴム), S B R (スチレンブタジエンゴム),

NBR（アクリロニトリルブタジエンゴム）等が挙げられる。

上述したごとき臭気ガスが発生する架橋ゴムの再生の際に、消臭剤を添加してもよい。これにより、一層臭気ガスの低減を図ることができる。なお、この場合の消臭剤としては、バニリン、リグニン等の香料、活性炭、セピオライト等の消臭剤等を用いることができる。
5

この他、分解生成物としてアミン化合物が発生するアクリルゴム等を本発明にかかる製造方法にて再生することができる。

上記脱揮キャリアーの添加量は架橋ゴム100重量部に対し、0.02～20重量部とすることが好ましい。これにより分解生成物を確実に除去することができる。0.02重量部未満である場合には効果が得難く、20重量部を越えた場合は脱揮キャリアーの揮発量が増大し、安定した架橋ゴムの再生が困難となるおそれがある。また、脱揮キャリアーの除去が不完全となり、多量の脱揮キャリアーが残存してしまうおそれがある。より好ましい下限は0.1重量部、更に好ましくは0.5重量部である。また、より好ましい上限は7重量部である。
15

上記脱揮キャリアーと共に分解生成物を除去する工程は、加熱脱揮、減圧脱揮、溶剤洗浄、バブリングより選択される手法を単独、または複合して利用することが好ましい。

上記加熱脱揮とは、分解生成物を気化させて除去させる方法、上記減圧脱揮とは、減圧により分解生成物の気化を促進させて除去する方法、上記溶剤洗浄とは、分解生成物を溶解除去する方法、上記バブリングとは、分解生成物の気化面積を増加させて除去を促進する方法である。
20

上記脱揮キャリアーとして低沸点化合物を用いると共に、分解生成物を脱揮キャリアーと共に除去する工程を減圧脱揮とすることが好ましい。これにより、特に分解生成物が臭気成分である場合に、減圧により臭気成分と低沸点化合物の気化が促進され、効率よい分解生成物の除去が実現できる。
25

特に分解生成物が臭気成分である場合、上記脱揮キャリアによる処理により、分解生成物を脱揮キャリア導入前の1/2以下となるようにすることが好ましい。より望ましくは1/3以下、更に望ましくは1/10以下である。

5 これにより、再生ゴムを再生ゴム成形品等とする際の作業環境を改善することができる。また、再生ゴムを後述するごとき再生ゴム成形品とした場合、該再生ゴム成形品の臭気を低減することができ、製品価値を高めることができる。

特に臭気成分が硫黄化合物や窒素化合物である場合には、脱揮キャリア導入前の1/3以下となるように脱揮を行なうことが好ましい。更に好ましくは1/20以下となるように脱揮を行なうことがよい。

上記架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程と、脱揮キャリアと共に分解生成物を除去する工程とは連続的に行なうことが好ましい。これにより効率的な架橋ゴムの再生が実現できる。

15 次に、架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程について説明する。

この再生工程は予熱工程、可塑化工程、混練工程よりなり、上記予熱工程は架橋点が切断される温度まで架橋ゴムが加熱される工程、上記可塑化工程は架橋ゴムにおける架橋点の切断が始まり、架橋ゴムが軟化し始める工程、混練工程は架橋点が切断され、ゴム分子がばらばらとなって混じりあう工程である。

上記可塑化工程の剪断力は1~100 MPaであることが好ましい。これにより確実に架橋ゴムの再生を行うことができる。剪断力が1 MPa未満である場合には、剪断力が小さすぎて、架橋点の切断の促進を充分に実行できず、再生の効率が低下するおそれがある。一方、100 MPaよりも大である場合には、剪断力が架橋点だけでなくゴム分子の主鎖の切断を進行させてしまうため、再生ゴムの物性低下のおそれがある。より好ましい可塑化工程

の剪断力の上限は 1.5 MPa である。

上記再生工程は、100～520°Cで行なうことが好ましい。主鎖の切断を抑制しつつ、架橋点の切断を行うためである。

更に、上記可塑化工程において、架橋ゴムの温度が 100～520°Cであることが好ましい。これにより確実に架橋ゴムの再生を行うことができる。温度が 100°C未満である場合には、架橋点の切断が充分進行しないおそれがある。また、520°Cより高い場合には、主鎖の切断が進行してしまうため、再生ゴムの物性が低下するおそれがある。上記温度範囲の上限は 450°C とすることがより好ましい。

再生工程においては、上記温度範囲となるように、必要に応じて加熱または冷却をする。せん断による架橋ゴムの発熱量が少なければ加熱し、多すぎる場合には冷却する。せん断による発熱量によって上記温度範囲になる場合には、外部からの熱の授受（加熱または冷却）をする必要はない。

上記温度範囲のより最適な範囲は架橋ゴムの種類によって異なる。例えば、自動車用タイヤ等を再生する場合には、180～360°Cが好ましい温度範囲となる。また、過酸化物架橋EPDM等を再生する場合には、220°C～450°Cが好ましい温度範囲となる。

再生時の温度範囲の上限は再生時間によって異なり、短時間であれば温度を高くする必要がある。

上記架橋ゴムの再生の工程は押出機を用いて行なうことが好ましい。これにより、架橋ゴムの再生を連続的に処理することができ、効率的な再生を実現できる。

押出機を利用することで、脱揮を押出機中において行なうことが可能となり、脱揮キャリアーと架橋ゴム、再生ゴムとの接触頻度を高めることができ、効率よい再生と脱揮を行なうことができる。

上記架橋ゴムが樹脂架橋ブチルゴムの場合には、本発明を使用することが

好ましい。

上記樹脂架橋ブチルゴムを従来方法で再生した場合は、再生中にフェノール樹脂等よりなる分解生成物が発生し、再生途中の樹脂架橋ブチルゴムと再反応するため、品質の低い再生ゴムしか得られなかつた。

- 5 本発明にかかる再生方法によれば、樹脂架橋ブチルゴムの再生において、分解生成物と再生途中の樹脂架橋ブチルゴムとの再反応による再生ゴムの品質の低下を防止できる。また、再生ゴムのスコーチ特性、保存安定性の低下を防止することもできる。

上記脱揮キャリアーは、不活性ガス、水、アルコールより選ばれる少なくとも1種であることが好ましい。これにより、本発明にかかる効果を確実に得ることができる。

特に水を用いることで、水による架橋ゴムの分解の促進と分解生成物を更に加水分解して無害化する効果を得ることができる。また、水の洗浄効果や、気化によるバブリング効果からの気化面積の増大、水蒸気のキャリアーガスとしての効果を得ることができるために、分解生成物を効率よく除去することができる。また、水は安価であるため、コスト安である。

上記不活性ガスとしては、N₂、Ar、He、CO₂等が挙げられる。

また、架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程または／及び以後の工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴムにおける分解生成物を除去することにより、再生ゴムを得、該再生ゴムを再架橋する、または該再生ゴムを熱可塑性樹脂と溶融ブレンドすることにより作製されたことを特徴とする再生ゴム成形品がある。

導入した脱揮キャリアーと共に分解生成物を除去することにより、分解生成物が除去され、再生途中の架橋ゴムや再生ゴムに分解生成物が残留し難くなる。よって、分解生成物による再生ゴムの品質低下が防止され、ひいては該再生ゴムを再架橋したり、熱可塑性樹脂と溶融ブレンドして作製した再生

ゴム成形品の品質低下を防止することができる。

その他詳細は上述の記載と同様である。

以上のごとく、本発明によれば、分解生成物の発生による品質の低下が発生し難い再生ゴム成形品を提供することができる。

- 5 上記架橋ゴムが樹脂架橋ブチルゴムの場合には、本発明を使用することが好ましい。

本発明によれば、樹脂架橋ブチルゴムの再生において、フェノール樹脂等の分解生成物と再生途中の樹脂架橋ブチルゴムとの再反応による再生ゴムの品質低下を防止することができる。また、再生ゴムのスコーチ特性、保存安定性の低下を防止することもできる。このため、保存安定性に優れ、成形加工性に優れた再生ゴム成形品を得ることができる。

上記再生ゴムの分解生成物量は、脱揮キャリアー導入前の $1/2$ 以下にしてあることが好ましい。これにより、分解生成物による品質低下を抑制することができる。

15

図面の簡単な説明

第1図は、実施形態例1における、架橋ゴムの再生に使用する二軸押出機の構造を示す説明図、

- 20 第2図は、実施形態例4における、架橋ゴムの再生に使用する二軸押出機の構造を示す説明図、

第3図は、実施形態例6における、架橋ゴムの再生に使用する二軸押出機の構造を示す説明図。

第4図は、実施形態例8における、押出機の注入脱揮箇所をゼロとして作製された再生材の臭気ガスのガスクロマトー質量分析結果を示す線図、

- 25 第5図は、実施形態例8における、押出機の注入脱揮箇所を2箇所として作製された再生材の臭気ガスのガスクロマトー質量分析結果を示す線図、

第6図は、実施形態例9における、脱臭回数と発生ガス量との関係図である。

発明を実施するための最良の形態

5 実施形態例1

本発明の実施形態例にかかる架橋ゴムの再生方法につき、第1図を用いて説明する。

本例の概略を説明すると、架橋ゴムに熱と剪断力を加えて再生する工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴムにおける分解生成物を除去する。

本例では次のような二軸押出機を用いて架橋ゴムの再生を行う。

第1図に示すごとく、二軸押出機1はスクリュ15が内蔵されたシリンダ11と、該シリンダ11に対し架橋ゴム10を導入する導入口110と、再生ゴム101が導出される押出口14とが設けてある。

15 上記シリンダ11の途中にポンプ19が設けてあり、該ポンプ19よりも押出口14側には脱揮ベント190が設けてある。また、上記ポンプ19により脱揮キャリアーは後述する混練ゾーン18に対し導入される。

また、本例の脱揮キャリアーとしては水191を用い、脱揮ベント190からは混練ゾーン18において気化した水蒸気192が分解生成物と共にシリンダ外へ排出される。

架橋ゴム10の加熱は二軸押出機1の外部に設け、図示を略した加熱器により実行され、また剪断力の付与は二軸押出機1におけるスクリュ15が回転することにより行われる。なお、上記スクリュ15の回転速度や形状を適当に選ぶことにより剪断力の大きさ等を制御することができる。

25 次に上記二軸押出機1を用いた再生方法の詳細について説明する。

第1図に示すごとく、導入口110より粉碎した架橋ゴム10を導入する。

シリンドラ 1 1 の内部は適当な温度に加熱されており、導入された架橋ゴム 1 0 はスクリュ 1 5 の回転により剪断力が付加されつつ徐々に押出口 1 4 の方向へ押し出され、移動する。架橋ゴム 1 0 は移動の過程で徐々に昇温される。これが予熱工程であり、同図における符号 1 6 にかかる領域が予熱工程が実現される予熱ゾーンとなる。

なお、上記予熱ゾーン 1 6 と以下に記載する可塑化ゾーン 1 7 との境界ははっきりと区別できない場合もある。

上記シリンドラ 1 1 内を架橋ゴム 1 0 が進行するにつれて、徐々に架橋ゴム 1 0 の温度が上昇する。所定の温度に達した時点で、架橋ゴム 1 0 の架橋点の分解が始まる。これが可塑化工程であり、同図における符号 1 7 にかかる領域が可塑化工程が実現される可塑化ゾーンとなる。

可塑化された架橋ゴム 1 0 は更に進行しつつ剪断力が加えられ、充分に架橋ゴム 1 0 の架橋点が切断され、ゴム高分子がばらばらになって混じりあい、再生ゴム 1 0 1 となる。これが混練工程であり、同図における符号 1 8 にかかる領域が混練工程が実現される混練ゾーンとなる。

そして、上記混練ゾーン 1 8 に対しポンプ 1 9 から脱揮キャリアーとなる水 1 9 1 が導入される。混練工程において水 1 9 1 は気化して水蒸気 1 9 2 となり、架橋ゴム 1 0 の分解生成物と共に脱揮ベント 1 9 0 から外部に排出される。

最後に充分可塑化が進行し、殆ど分解生成物を含まない再生ゴム 1 0 1 が押出口 1 4 から押し出される。

次に、本例の再生方法にかかる各種架橋ゴムの再生試験について、従来方法と比較して説明する。

使用した各種架橋ゴム及び再生条件について表 1 に記載した。

同表において NR / S B R = 7 / 3 とは天然ゴムとスチレンブタジエンゴムとが重量比 7 : 3 でブレンドされたブレンドゴムである。また、NR / S

B R = 3 / 7 も同様である。また、N B R はアクリロニトリルブタジエンゴムである。

上記試料 1 ~ 6 にかかる架橋ゴムを 10 ミリ以下に粉碎し、スクリュ径 30 ミリ、スクリュ長 1200 ミリの第 1 図に示すとき二軸押出機に導入した。

そして、再生時のスクリュの回転数、再生時の可塑化工程の行われる可塑化ゾーンの材料温度、可塑化工程での剪断力を表 1 に記載した。また、同表の処理能力は時間あたりシリンダに導入される架橋ゴムの重量である。

そして、表 2、表 3 に示すように脱揮の条件を適宜変更して架橋ゴムの再生を行なった。表 2、表 3 にかかる脱揮の条件について説明すると、「脱揮なし」では第 1 図にかかる二軸押出機 1 においてポンプ 19 を停止させ、脱揮ベント 190 をオープンして再生を行なった結果である。なお、本試験において、脱揮なしの条件で得られた再生ゴムを比較基準とする。

また、「減圧脱揮」では、脱揮ベントからゲージ真空度 20 torr で減圧して再生を行なった。脱揮キャリアーは使用しなかった。

また、「水注入」では、ポンプ 19 を作動させ、水 191 を注入した（架橋ゴムに対する注入量は 5 wt %）。ただし、脱揮ベントはオープンして再生を行なった。脱揮ベントはオープンされているが、減圧されていないため、注入された水はシリンダ内で気化するが、外部には殆どでてこなかった。

また、「水注入脱揮」では、ポンプ 19 を作動させ、水 191 を注入し（注入量 5 wt %）、脱揮ベントから真空度 20 torr で減圧して再生を行なった。このため、注入された水 191 はシリンダ内で気化して水蒸気となり、脱揮ベントから外部へと排出された。

また、「熱脱揮 160°C・2 時間」「熱脱揮 200°C・2 時間」は脱揮なしの条件で得られた再生ゴムを 160°C または 200°C の熱風炉に 2 時間放置した。

以上の結果、得られた各再生ゴムの状態を観察し、結果について表2、表3に記載した。

脱揮なしにより得られた各再生ゴムであるが、いずれも非常に臭気が強く、得られた再生ゴムを再架橋して再生ゴム成形品とした場合、再架橋工程中に
5 臭気が充満し、作業環境が非常に悪化した。また、得られた再生ゴム成形品からも非常に強い臭気が存在し、用途が非常に限られることが分かった。

減圧脱揮により得られた再生ゴムは外観は良好であり、また臭気も脱揮なしの条件で得られた再生ゴムよりは改善された。

しかし、臭気の低下量が少なく、実用的ではなかった。

10 水注入により得られた再生ゴムの外観は良好である。臭気については脱揮なしのものとあまり変わらず、実用性が薄かった。

水注入脱揮により得られた再生ゴムは外観が良好で、臭気も脱揮なしのものに比べて大きく改善した。この再生ゴムを再架橋して再生ゴム成形品とした場合、再架橋工程中の臭気もなく、得られた再生ゴム成形品にも殆ど臭気
15 が感じられなかった（後述する実施形態例2参照）。

また、熱脱揮を施した場合は臭気が低下するものの、試料2、4、5、6といった熱に弱いゴムについて表面が、硬く、脆くなるという状態に酸化劣化した。このような状態にまで劣化した再生ゴムは再架橋した場合、表面品質や力学的特性の低い再生ゴム成形品しか得られず、実用性に乏しい。

20 以上より知れるごとく、本例の再生方法によれば、脱揮キャリアーである水が架橋ゴムの再生中に発生する分解生成物である臭気を除去することができる。よって、臭気による問題を防止することができる。

以上、本例によれば、分解生成物の発生による品質の低下が発生し難い架橋ゴムの再生方法を提供することができる。

5

10

15

20

25

(表1)

No.	種類	材質	スクリュ回転数 (rpm)	材料温度 (°C)	処理能力 (kg/h)	剪断力 (kg/cm ²)
試料1	ガラスラン廃材	シリコンEPDM	300	300	10	30
試料2	ウェザーストリップ廃材	スポンジEPDM	300	300	10	30
試料3	プラダ一廃材	樹脂架橋ブチルゴム	300	280	10	30
試料4	大型タイヤ廃材	NR/SBR=7/3	200	200	10	20
試料5	乗用車タイヤ廃材	NR/SBR=3/7	400	220	10	40
試料6	カーペット裏打ち廃材	NBR	500	230	10	50

5

10

15

20

25

(表2)

No.	脱揮なし	減圧脱揮			水注入			水注入脱揮	
		外観	臭気	外観	臭気	外観	臭気	外観	臭気
試料1	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下
試料2	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下
試料3	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下
試料4	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下
試料5	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下
試料6	比較基準	良好	少し低下	良好	僅かに低下	良好	大幅低下	良好	大幅低下

(表3)

No.	熱脱揮(160°C・2時間)		熱脱揮(200°C・2時間)	
	外観	臭気	外観	臭気
試料1	良好	僅かに低下	良好	少し低下
試料2	酸化劣化	僅かに低下	酸化劣化	少し低下
試料3	良好	僅かに低下	良好	少し低下
試料4	酸化劣化	僅かに低下	酸化劣化	少し低下
試料5	酸化劣化	僅かに低下	酸化劣化	少し低下
試料6	酸化劣化	僅かに低下	酸化劣化	少し低下

5

10

実施形態例 2

本例は実施形態例 1 で作製した試料 1 にかかる再生ゴムの性能を脱揮なし、水注入脱揮、熱脱揮の場合についてそれぞれ比較した。

各再生ゴムを 200°C, 30 分加熱し、発生したガスをガスクロマトー質量分析器を用いて分析した。ただし、ゴム中に含まれるオイル分の値を測定結果から除いた。この結果を表 4 に記載した。

同表においてピーク数とは、検出成分の発生数で、検出ピークの総面積とは、検出ガスの発生量を示す値である。いずれの値も小さければ小さいほど再生ゴムから発生したガスが少ないと考えられる。つまり、値が小さいほど再生ゴムに含まれる臭気ガスの量が少なく、作業環境の改善、臭気の少ない再生ゴム成形品が得られる。

そして、同表によれば、水注入脱揮による本発明にかかる再生ゴムの値が一番小さいことが分かった。また、熱脱揮についてもかなり臭気ガスを除去できることが分かった。ただし、上述した実施形態例 1 に示すごとく、熱に弱いゴムでは表面酸化が発生するため、長時間の熱脱揮は実用性に乏しい。

また、この測定の結果から、200°C, 30 分間加熱した場合のピーク数

や検出ピークの総面積を $1/2$ とすることで大いに臭気が低減できることが分かった。

(表4)

		ピーク数	検出ピークの総面積
5	脱揮なし	209	118.6
	水注入脱揮	129	54.7
	熱脱揮(200°C,0.5時間)	165	77.4
	熱脱揮(200°C,1時間)	176	78.3
	熱脱揮(200°C,2時間)	154	62.7
	熱脱揮(200°C,4時間)	155	64.8

実施形態例 3

本例は実施形態例 1 の試料 1, 2, 4 の架橋ゴムを実施形態例 1 の方法で再生し、得られた再生ゴムを架橋して再生ゴム成形品を作製し、その性能を評価するものである。

得られた再生ゴムに対し架橋剤を表 5 に記載するごとく添加し、試料 1 については再生ゴムのみで、試料 2 については再生ゴムと同成分の新品の未架橋ゴムを重量比で半々の割合で混合し、また試料 4 については同様に 2 : 8 の割合で混合し、同表に示すとき条件で架橋した。

また、各再生ゴムは、脱揮なし、水注入脱揮、熱脱揮にて得られたものをそれぞれ使用した。

そして、再生ゴムの状態でのムーニー粘度及びキュラストメーターによる加硫特性を J I S K - 6 3 0 0 の記載に準じて測定した。いずれも表 6 に記載した。

得られた再生ゴム成形品は、J I S K - 6 3 0 1 に準じて、引張破断強さと引張破断伸びを測定した。

また、再生ゴムを作製する工程中での臭気の発生具合は10人のオペレータによる官能評価の総合点で評価した。

官能評価の基準は、

- 5 点... 短時間でも作業困難な不快臭,
- 5 4 点... 短時間は作業可能な不快臭,
- 3 点... 長時間の作業可能な不快臭,
- 2 点... 作業に影響しない不快臭,
- 1 点... 不快と思わないが臭気を感じる,
- 0 点... 臭気を感じない,

10 である。この点数を合計したものが官能評価の総合点で、表6に記載した。

また、得られた再生ゴム成形品の臭気を官能評価した。

表5によれば、水注入脱揮により、作業時の臭気及び再生ゴム成形品の臭気が改善することが分かる。また、水注入脱揮は加硫特性や機械特性に影響を及ぼさないが、熱脱揮は熱劣化し易いスポンジE P D Mや大型タイヤの加
15 硫特性や機械特性に悪影響を及ぼすことが分かった。

10

15

20

25

5

(表5)

No.	種類	材質	ゴム成分100重量部に対する 架橋剤の添加量(重量部)	再生ゴムの添加量 (重量部)	架橋条件
試料1	ガラスラン 廃材	ソリッド EPDM	硫黄(0.8), 酸化亜鉛(1.7), ステアリン酸(0.3), ノクセラーTT(0.67), ノクセラーメ(0.17)	100	160°C・20分
試料2	ウェザーストリップ 廃材	スピネル EPDM	硫黄(0.8), 酸化亜鉛(1.7), ステアリン酸(0.3), ノクセラーTT(0.67), ノクセラーメ(0.17)	50	160°C・20分
試料4	大型タイヤ 廃材	NR/SBR =7/3	硫黄(3), 酸化亜鉛(5), ステアリン酸(1), ノクセラーセZ-G(1.0)	20	141°C・20分

「ノクセラー」は大内新興化学の商品名である。

5

10

15

20

25

(表6)

No.	ムーニー粘度 (ML1+4, 100°C)	キュラスト; T10/T90(分)	引張 破断強さ (MPa)	引張 破断伸び (%)	工程中の 工具の 官能評価 (総合点)	再加 硫物の 臭気
試料1	脱揮なし	65	1.95/6.35(170°C)	13.5	470	40
	水注入脱揮	63	2.03/5.53(170°C)	13.3	490	16
	熱脱揮 (200°C・2時間)	60	1.62/6.24(170°C)	13	450	24
試料2	脱揮なし	52	0.58/2.63(170°C)	8.52	320	残存
	水注入脱揮	53	0.52/2.54(170°C)	8.72	350	なし
	熱脱揮 (200°C・2時間)	70	0.87/4.65(170°C)	6.58	250	未測定
試料4	脱揮なし	55	1.85/9.52(150°C)	19.5	450	残存
	水注入脱揮	52	1.73/9.76(150°C)	19.1	480	なし
	熱脱揮 (200°C・2時間)	48	2.14/11.83(150°C)	17.3	350	なし

実施形態例 4

本例は加硫E P D Mを再生すると共にP P樹脂をブレンドする方法について説明する。

まず、本例にて使用した押出機について説明する。

- 5 第2図に示すごとく、二軸押出機1は、シリンド11と該シリンド11の途中に設けたサイドフィーダ2とよりなり、該サイドフィーダ2はサブシリンド22とスクリュ25とよりなる。

上記サイドフィーダ2はポンプ19及び脱揮ベント190よりも押出口14側に配置されている。また、上記サイドフィーダ2よりも押出口14側に10はポンプ20と脱揮ベント200が設けてある。

次に、再生方法の詳細について説明する。

カーボンブラックを50重量%含有する硫黄架橋のE P D Mゴム端材を10mm角程度に粉碎した。これが本例にかかる架橋ゴム10である。

また、P P樹脂（ポリプロピレン樹脂）のペレットを準備した。

- 15 二軸押出機1の導入口110に架橋ゴム10を導入した。

シリンド11の内部は300°Cに加熱されており、導入された架橋ゴム10がスクリュ15にて徐々に押出口14の方向へ押し出され、昇温される。これが予熱工程であり、予熱ゾーン16で実現される。

なお、スクリュ15の回転数は400 r p mとした。また、再生処理能力20は5 k g / hとした。

シリンド11内を架橋ゴム10が進行するにつれて、徐々に架橋ゴム10の温度が上昇する。所定の温度に達した時点で架橋点の分解が始まる。これが可塑化工程であり、可塑化ゾーン17にて実現される。

可塑化された架橋ゴム10は更に押出口に向かって進行し、剪断力により25再生ゴムとなる。これが混練工程であり、混練ゾーン18にて実現される。

そして、上記混練ゾーン18に対しポンプ19から脱揮キャリアとなる

水 191 が導入される。混練工程において水 191 は気化して水蒸気 192 となり、架橋ゴム 10 の分解生成物と共に脱揮ベント 190 から外部に排出される。

また、上述したプロセスと併行してサイドフィーダ 2 に PP樹脂 21 を導入した。PP樹脂 21 はシリンド 22 内のスクリュ 25 により、シリンド 1 1 の混練ゾーン 18 の後に導入され、可塑化される。

ここにおいて、架橋ゴム 10 より生成した再生ゴムと PP樹脂 21 とがスクリュ 15 により溶融混練される。この溶融混練が行われるのが符号 189 にかかるブレンドゾーンである。なお、PP樹脂 21 添加後（つまりブレンドゾーン 189）の温度は 230°C に維持されている。

そして、上記ブレンドゾーン 189 に対しポンプ 20 から脱揮キャリアーとなる水 201 が導入される。ブレンドゾーン 189 において水 201 は気化して水蒸気 202 となり、各種の分解生成物と共に脱揮ベント 200 から外部に排出される。

そして、最後に押出口 14 から可塑化して PP樹脂とブレンドされた再生ゴム／PPブレンド物 108 が押し出された。

なお、本例の再生方法において、加硫 E PDM 粉碎物と PP樹脂との導入量は表 7 にかかる値とした。

また、水の添加量はポンプ 19 では加硫 E PDM に対して 5 w t %、ポンプ 20 では加硫 E PDM と PP樹脂とのブレンド物の総量に対して 5 w t % であり、脱揮は減圧脱揮であり、ゲージ圧力は 20 torr であった。

上記再生ゴム／PPブレンド物 108 について、再生工程中及び再生終了後の臭気を評価した。再生ゴム／PPブレンド物の臭気は、脱揮なしの再生方法で得られた再生ゴム／PPブレンド物との比較で記載した。また、工程中の臭気の評価基準は実施形態例 3 と同じである。

以上の結果を表 7 に記載した。

同表によれば、本発明にかかる脱揮キャリアーである水を用いて再生を行うことにより、大幅に臭気を低減できることが分かった。

(表7) 加硫EPDM (重量部)	PP樹脂 (重量部)	脱揮	工程中の臭気 の官能評価 (総合点)	再生ゴム/ PPブレンド物 の臭気
30	70	水注入脱揮	16	大幅低下
30	70	脱揮なし	40	あり
80	20	水注入脱揮	16	大幅低下
80	20	脱揮なし	40	あり

5

10

15

20

25

実施形態例 5

本例も実施形態例 4 と同様に加硫 E P D M を再生すると共に P P 樹脂をブレンドする方法について説明する。

ただし、本例では消臭剤を P P 樹脂と共に二軸押出機に導入して再生を行
5 なった。また、加硫 E P D M と P P 樹脂との配合比は 80 重量部／20 重量部とした。

消臭剤の導入の有無とその種類は表 8 に示すとおりである。また、比較として、脱揮なしの再生方法で再生した場合の臭気についても調べた。

この再生工程及びブレンド工程中での臭気と再生ゴム／P P ブレンド物の
10 臭気を評価した。

得られた再生ゴム／P P ブレンド物の臭気を消臭剤の有無に関して比較した。また、臭気の評価基準は実施形態例 3 と同じである。

以上の結果を表 8 に記載した。

同表によれば、水注入脱揮を行い、更に消臭剤を添加することにより、再生工程中での不快臭及び再生品中の不快臭を一層抑制できることが分かった。
15

(表8)

脱揮方法	消臭剤		工程中の臭気	臭気
	種類	添加量		
なし	—	—	基準	基準
なし	バニリン	0.5wt%	効果なし	効果なし
なし	リグニン	0.5wt%	効果なし	効果なし
水注入脱揮	—	—	大幅低下	大幅低下
水注入脱揮	バニリン	0.5wt%	不快臭なし	不快臭なし
水注入脱揮	リグニン	0.5wt%	不快臭なし	不快臭なし

実施形態例 6

本例は脱揮キャリアーである水を注入する箇所、脱揮ベントを設ける箇所を違えて架橋ゴムの再生を行なった。

第3図に示すごとく、実施形態例1と同様の二軸押出機1において、ポンプP1～P3、脱揮ベントV1～V3を設けた。これらのポンプや脱揮ベントはシリンダ内において予熱ゾーン、可塑化ゾーン、混練ゾーンに対応するよう配置されている。

本例において使用した架橋ゴムは実施形態例1に示した試料1である。

そして、表9に示すごとき状態にポンプと脱揮ベントとを操作した各条件で架橋ゴムの再生を行なった。得られた再生ゴムの臭気を評価した。

同表に示すごとく、条件1（つまり脱揮キャリアーによる脱揮を行なわない）を基準とした場合、条件2～4は再生ゴムの臭気が低下したことが分かった。中でも、条件4では大幅に低下した。

また、条件5、7は可塑化ゾーンに対し水を注入し、可塑化ゾーンや混練ゾーンに設けたベントで脱揮を行なった。条件5では再生ゴムの臭気は低下したが、あまり大きな効果が得られなかつた。一方、条件7では臭気の低下が認められた。

また、条件6は予熱ゾーンで水を注入し、脱揮を行なつた。しかしながら、予熱ゾーンではいまだ架橋ゴムが可塑化されておらず、よって分解生成物は発生していない。このため、本発明にかかる脱揮キャリアーによる効果が殆ど得られないことが分かつた。

10

15

20

25

5

25

(表9)

	P1	P2	P3	V1	V2	V3	臭気
条件1	無注入	無注入	無注入	クローズ	クローズ	オーブン	基準
条件2	無注入	無注入	水(0.01wt%)	クローズ	クローズ	減圧脱揮	少し低下
条件3	無注入	無注入	水(0.5wt%)	クローズ	クローズ	減圧脱揮	低下
条件4	無注入	無注入	水(5.0wt%)	クローズ	クローズ	減圧脱揮	大幅低下
条件5	無注入	水(5.0wt%)	無注入	クローズ	減圧脱揮	クローズ	低下
条件6	水(5.0wt%)	無注入	無注入	減圧脱揮	クローズ	クローズ	1と同等
条件7	無注入	水(5.0wt%)	無注入	クローズ	クローズ	減圧脱揮	大幅低下

実施形態例 7

本例は実施形態例 1 の試料 3 の樹脂架橋ブチルゴムを実施形態例 1 の方法で再生し、得られた再生ゴムを架橋して再生ゴム成形品を作製し、その性能を評価するものである。

5 得られた再生ゴム 30 重量部に対し、新品の未架橋のブチルゴム 70 重量部を混合する。このようなゴム成分 100 重量部に対し、硫黄を 2.0 重量部、酸化亜鉛 5.0 重量部、TMTD を 1.0 重量部、MBT を 0.5 重量部添加した。

また、再生ゴムは、脱揮なし、水注入脱揮にて得られたものをそれぞれ使
10 用した。

そして、再生ゴムの状態でのムーニー粘度及びキュラストメーターによる加硫特性を JIS K-6300 の記載に準じて測定し、表 10 に記載した。

また、再生ゴム成形品は、JIS K-6301 に準じて、引張破断強さと引張破断伸びを測定し、表 10 に記載した。

15 また、不純物量を、実施形態例 2 と同様にガスクロマトー質量分析方法で測定し、表 10 に記載した。

同表によれば、脱揮なしではキュラストメーターの T10 の時間が短いことからスコーチが発生したことが分かった。更に、スコーチが発生することから保存安定性に問題があり、大物の成形が困難であることが分かった。

20 また、水注入脱揮を行なった場合は、スコーチが発生せず、保存安定性に優れ、大物の成形性に優れることが分かった。

また、同表における不純物量より、水注入脱揮の場合、脱揮なしのものに比べて総面積を 1/2 以下とすることで、加硫特性に悪影響を及ぼす各種の分解生成物が減少し、スコーチ対策もできることがわかった。

(表10)

	ムーニー粘度 (ML1+4, 100°C)	キュラスト; T10/T90 (分)	引張 破断強さ (MPa)	引張 破断伸び (%)	不純物量 (*)
脱揮なし	60	0.8/43.5 (160°C)	7.3	320	158/180.3
水注入脱揮	60	3.5/35.3 (160°C)	9.2	470	123/83.7

(*)ピーカ数／総面積(GC-MS分析)

実施形態例 8

本例は実施形態例 1 で使用した押出機の注入脱揮箇所を 0 箇所または 2 箇所（可塑化ゾーン及び混練ゾーンに各 1 箇所）とし、それ以外の条件は実施形態例 1 と同一条件で試料 1 を処理してソリッド E P D M の再生材を作製した。それぞれの再生材を 100°C, 5 分間加熱し、発生したガスをガスクロマト-質量分析機器を用いて分析した。この評価結果を図 4, 図 5 及び表 1 1 に示した。図 4 は、注入脱揮箇所が 0 箇所の場合、図 5 は、注入脱揮箇所が 2 箇所の場合を示す。

図 4, 図 5において、横軸は検出時間（分）で縦軸は信号強度である。表 1 1 において、ピーカ数とは検出成分の発生数で、検出ピーカの総面積とは検出ガス量を示す値である。

同図及び同表から、水注入脱揮により臭気成分等の分解生成物を大幅に低減できることが分かった。

(表11)

脱揮箇所	ピーカ数	検出ピーカの総面積
0(脱揮なし)	24	197.4
2	7	35.0

実施形態例 9

本例は、実施形態例 1 で使用した押出機の注入脱揮箇所を 0 箇所から 3 箇所とした。詳しくは、可塑化ゾーンについては 1 箇所、混練ゾーンについては 2 箇所とし、動作・不動作の切替により適宜数の変更を行った。それ以外 5 の条件は実施形態例 1 と同一条件で試料 4 を処理して大型タイヤ廃材の再生材を作製した。

それぞれの再生材を 130 °C、30 分加熱し、発生したガスをガスクロマト一質量分析機器を用いて分析した。この評価結果を図 6 に示した。図 6 において、再生原料（大型タイヤ廃材）の分析結果を標準臭気レベルとして示 10 した。図 6 において、横軸は脱臭回数（動作させた注入脱揮箇所の数）で、縦軸は 0 回脱臭の検出量を 100 としたときの相対値である。

同図から、水注入脱揮により臭気成分などの分解生成物を大幅に低減でき、その臭気レベルは原料レベル以下であることがわかった。

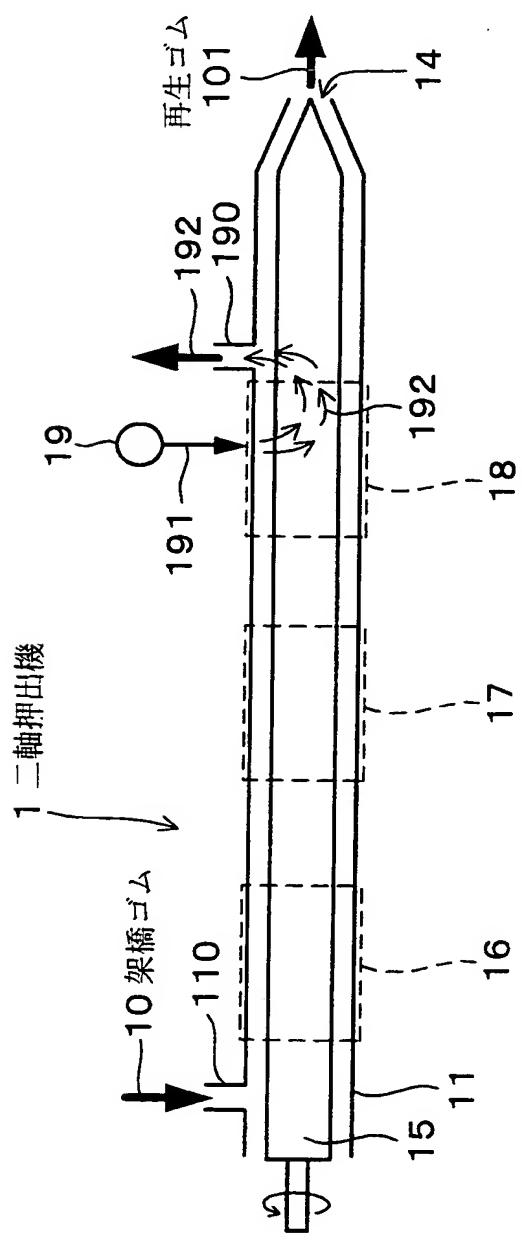
請求の範囲

1. 架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程または／及び以後の工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴムにおける分解生成物を除去することを特徴とする架橋ゴムの再生方法。
5
2. 請求の範囲 1において、上記架橋ゴムは樹脂架橋ブチルゴムであることを特徴とする架橋ゴムの再生方法。
3. 請求の範囲 1において、上記脱揮キャリアーは、不活性ガス、水、アルコールより選ばれる少なくとも 1 種であることを特徴とする架橋ゴムの再生方法。
10
4. 請求の範囲 1において、上記再生工程は、100～520℃で行うことを特徴とする架橋ゴムの再生方法。
5. 架橋ゴムに剪断力を加えて再生する再生工程または／及び以後の工程において、脱揮キャリアーを導入し、該脱揮キャリアーと共に架橋ゴムにおける分解生成物を除去することにより、再生ゴムを得、該再生ゴムを再架橋する、または該再生ゴムを熱可塑性樹脂と溶融ブレンドすることにより作製されたことを特徴とする再生ゴム成形品。
15
6. 請求の範囲 5において、上記架橋ゴムは樹脂架橋ブチルゴムであることを特徴とする再生ゴム成形品。
- 20 7. 請求の範囲 5において、上記再生ゴムの分解生成物量は、脱揮キャリアー導入前の 1 / 2 以下にしてあることを特徴とする再生ゴム成形品。



1/6

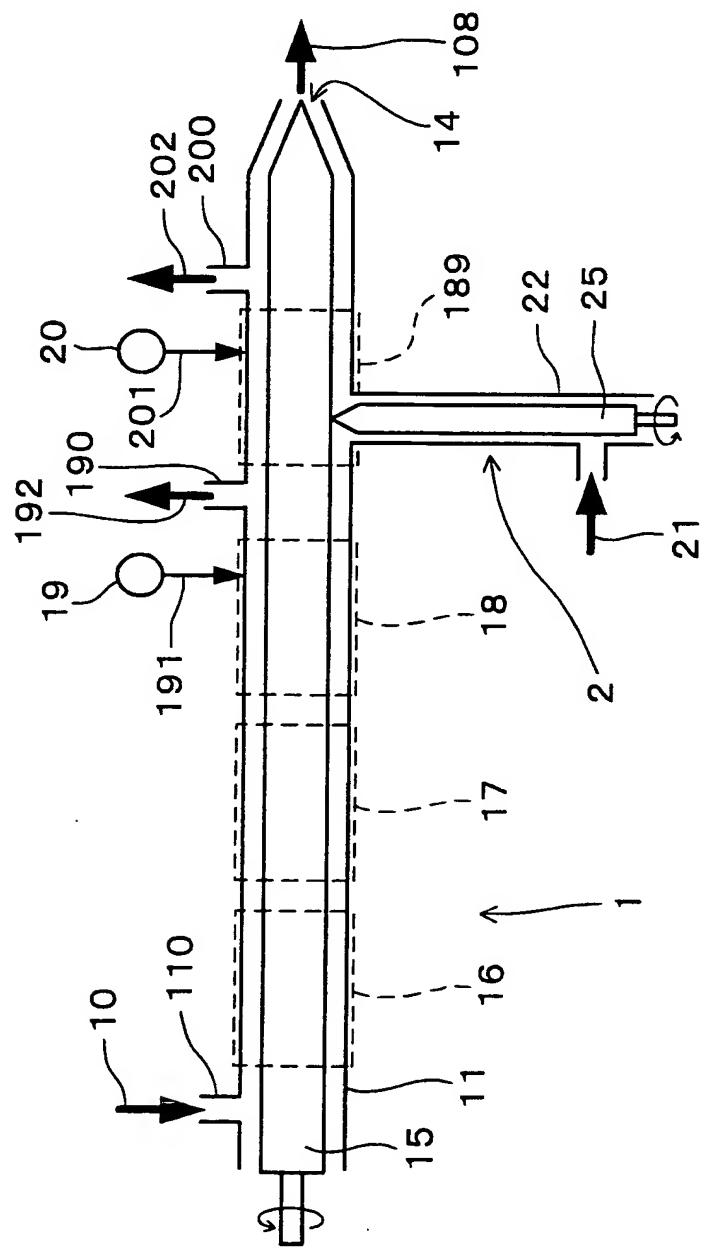
第1図





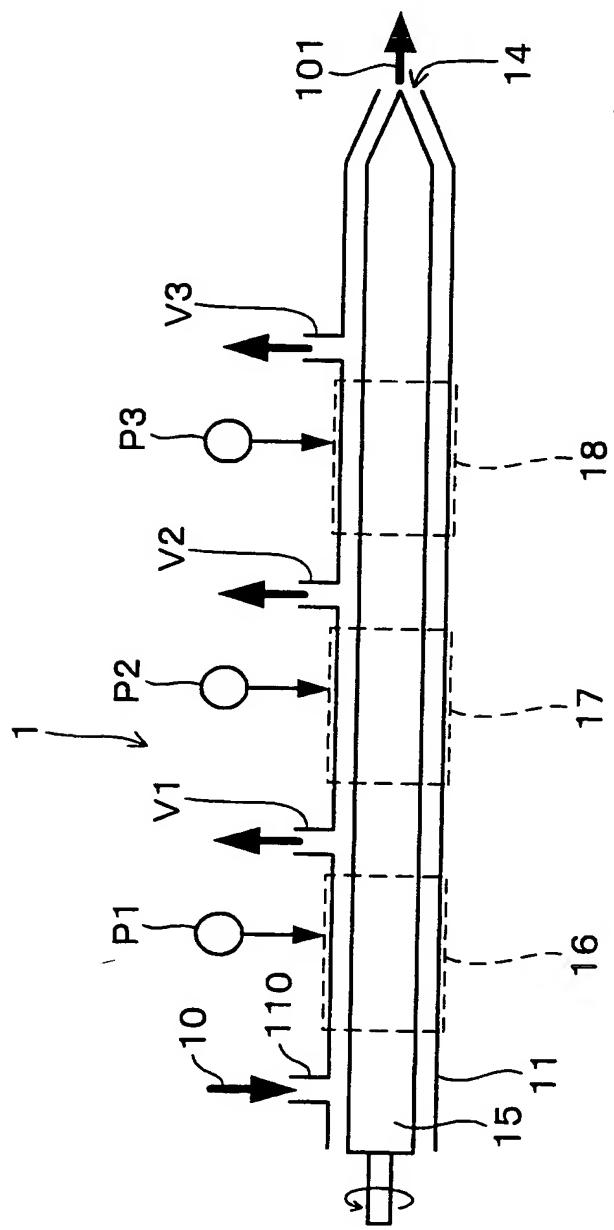
2/6

第2図





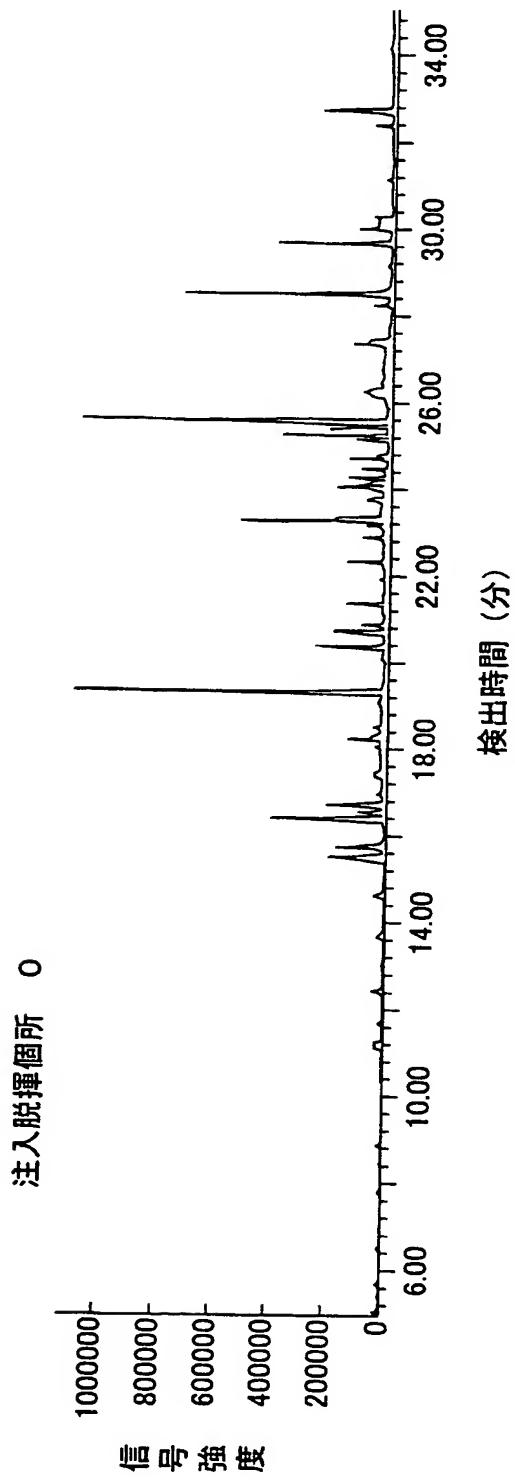
第3図

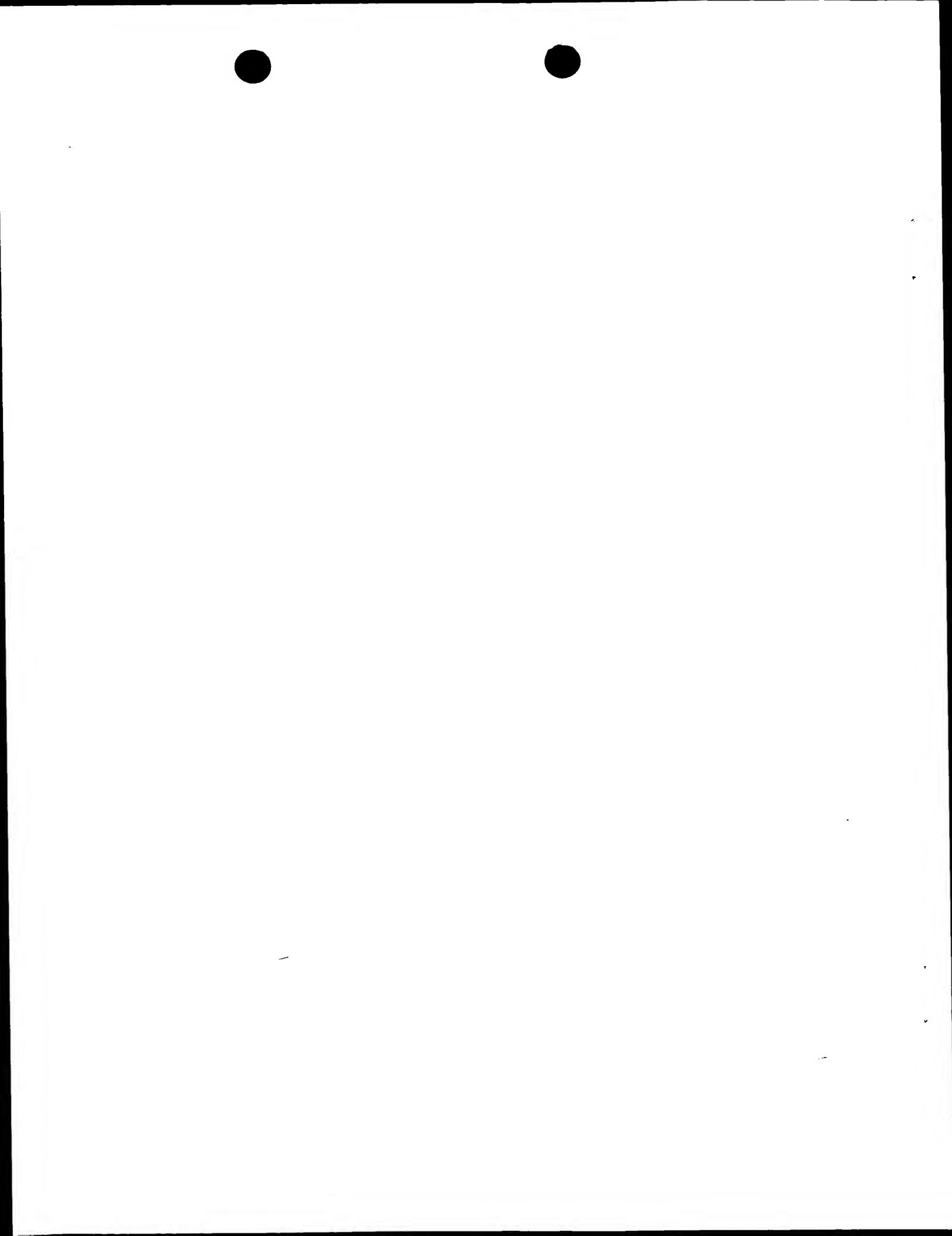




4/6

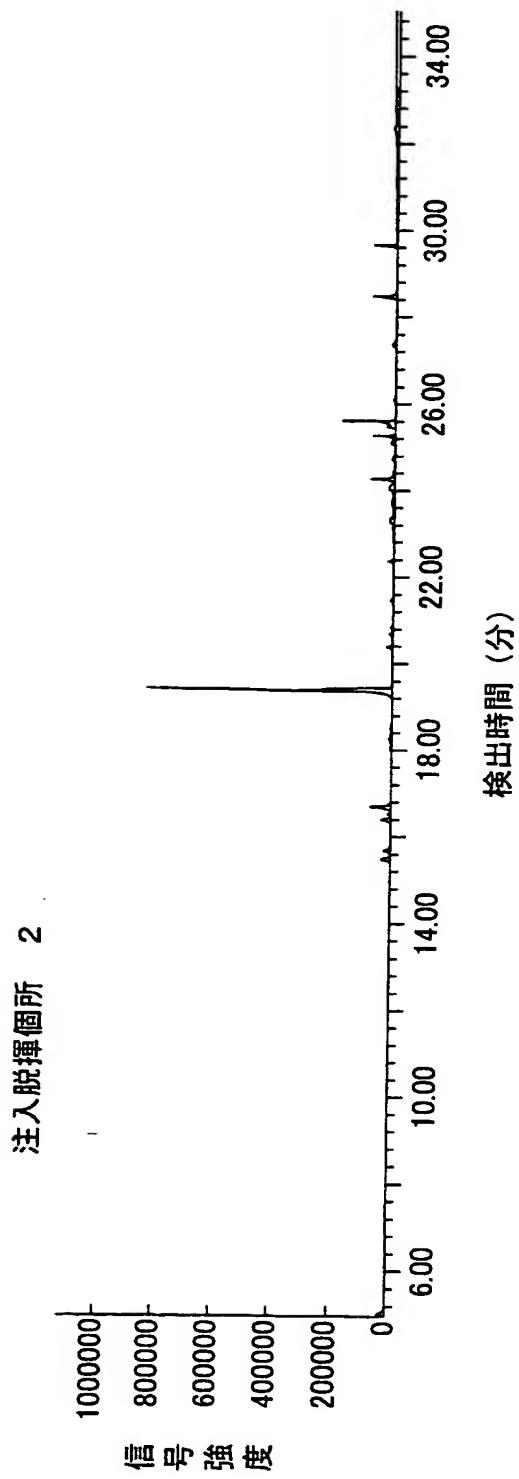
第4図

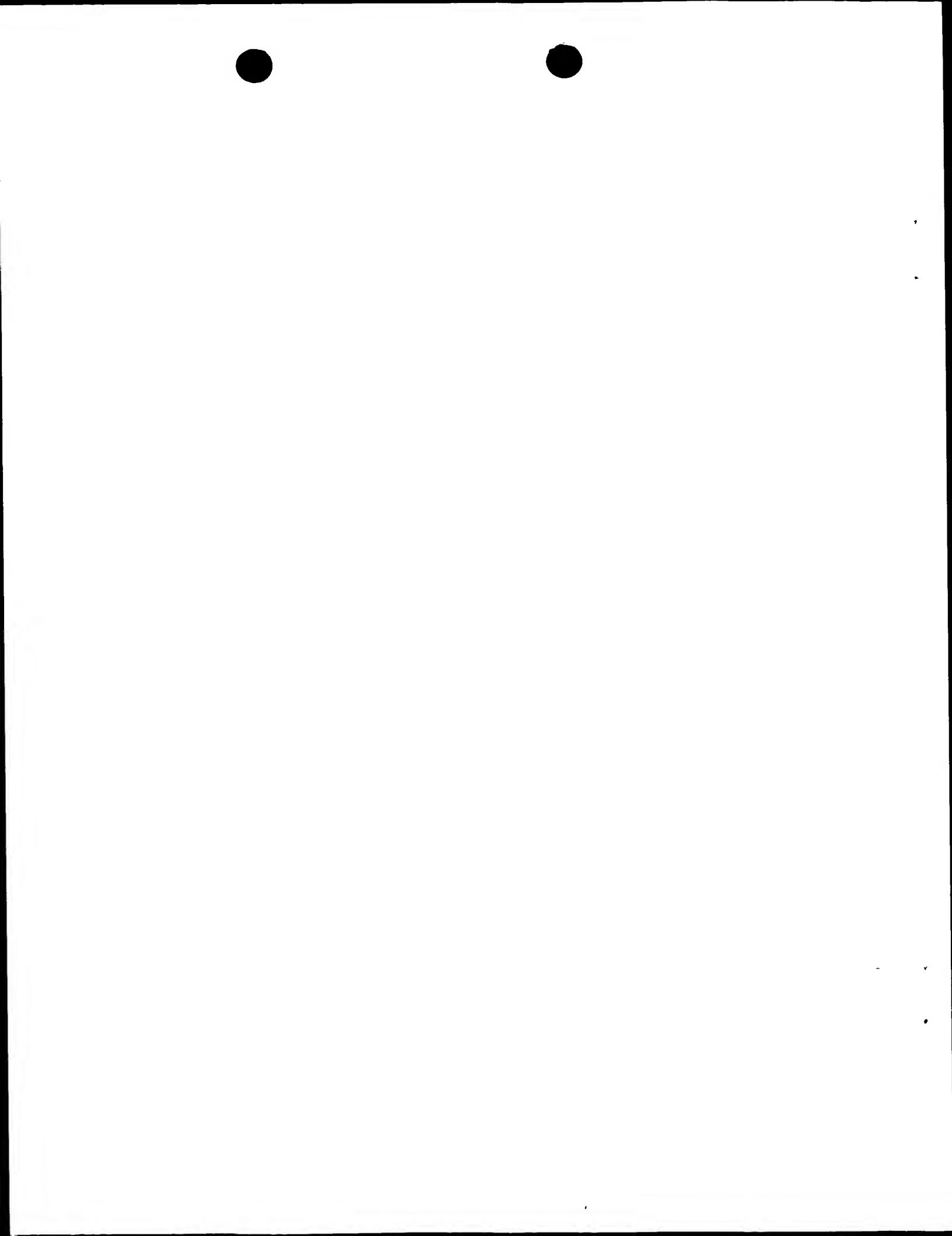




5/6

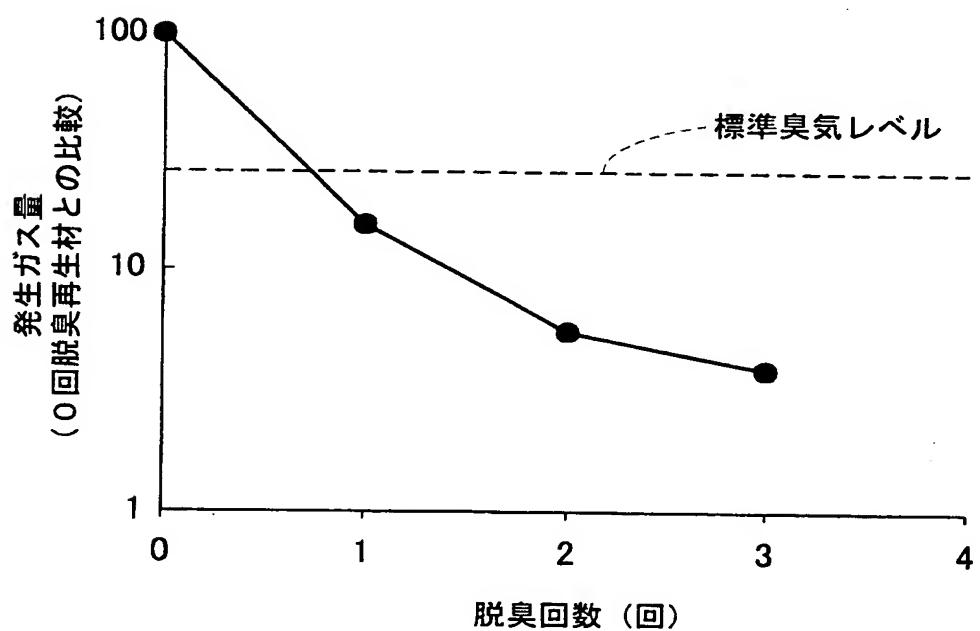
第5図

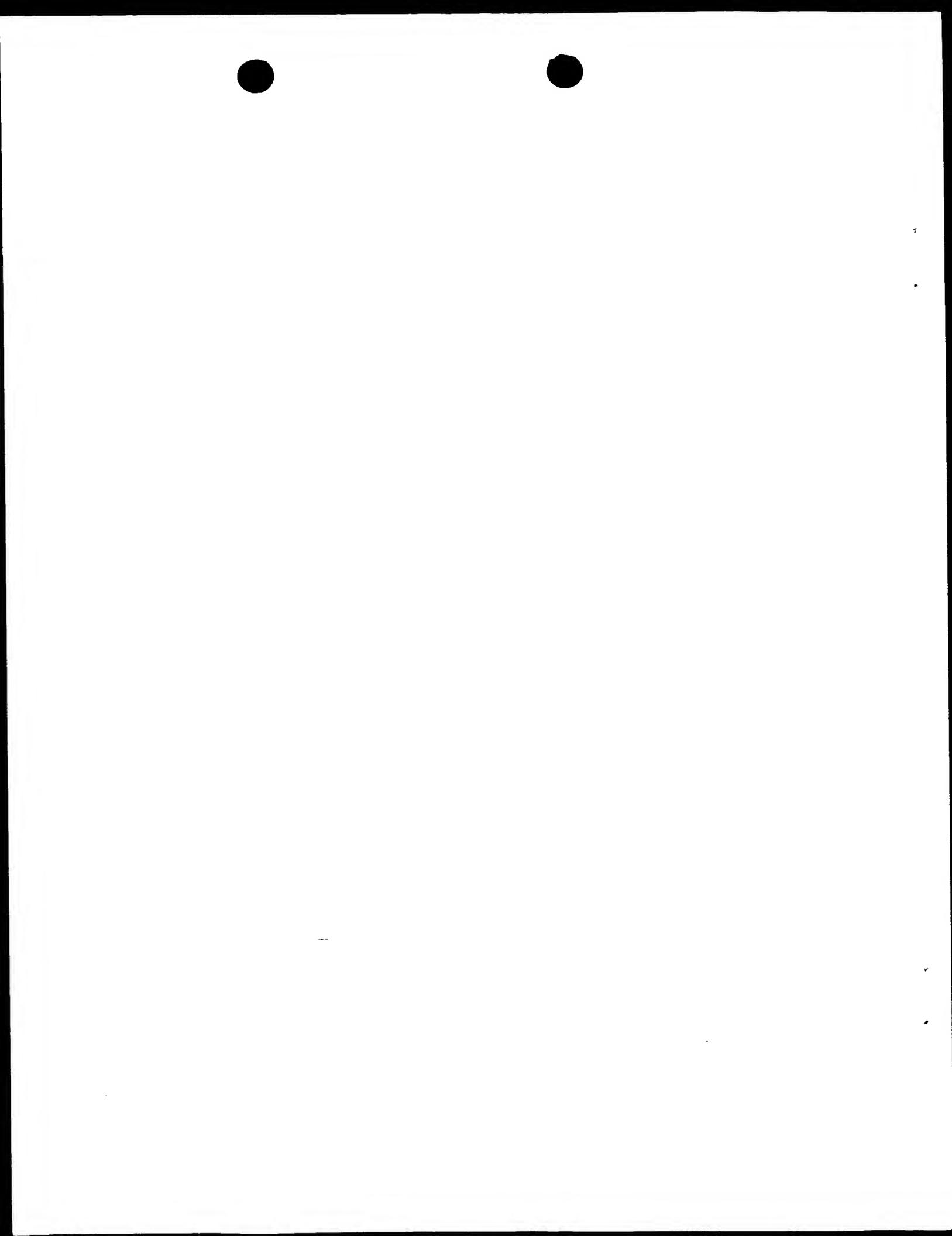




6/6

第6図





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03712

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl' B29B17/00, C08J11/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl' B29B17/00, C08J11/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1992-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-287765, A (Yamabishi Ind. Co., Ltd.), 27 October, 1998 (27.10.98), Claims 1, 3, 4; Par. No. [0008] (Family: none)	1-3, 5-7
A	JP, 11-140222, A (Toyoda Gosei Co., Ltd.), 25 May, 1999 (25.05.99), Claim 1 ; Par. No. [0013] (Family: none)	1-7
A	JP, 7-227846, A (Micro Denshi K.K.), 29 August, 1995 (29.08.95), Claim 1; Par. Nos. [0001], [0022], [0023] (Family: none)	1-7
A	JP, 5-133514, A (Micro Denshi K.K.), 28 May, 1993 (28.05.93), Claims 1, 2; Par. Nos. [0025], [0026], [0027] (Family: none)	1-7
A	JP, 10-310662, A (Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc.), 24 November, 1998 (24.11.98), Claim 1; Par. Nos. [0012], [0013] (Family: none)	1-7

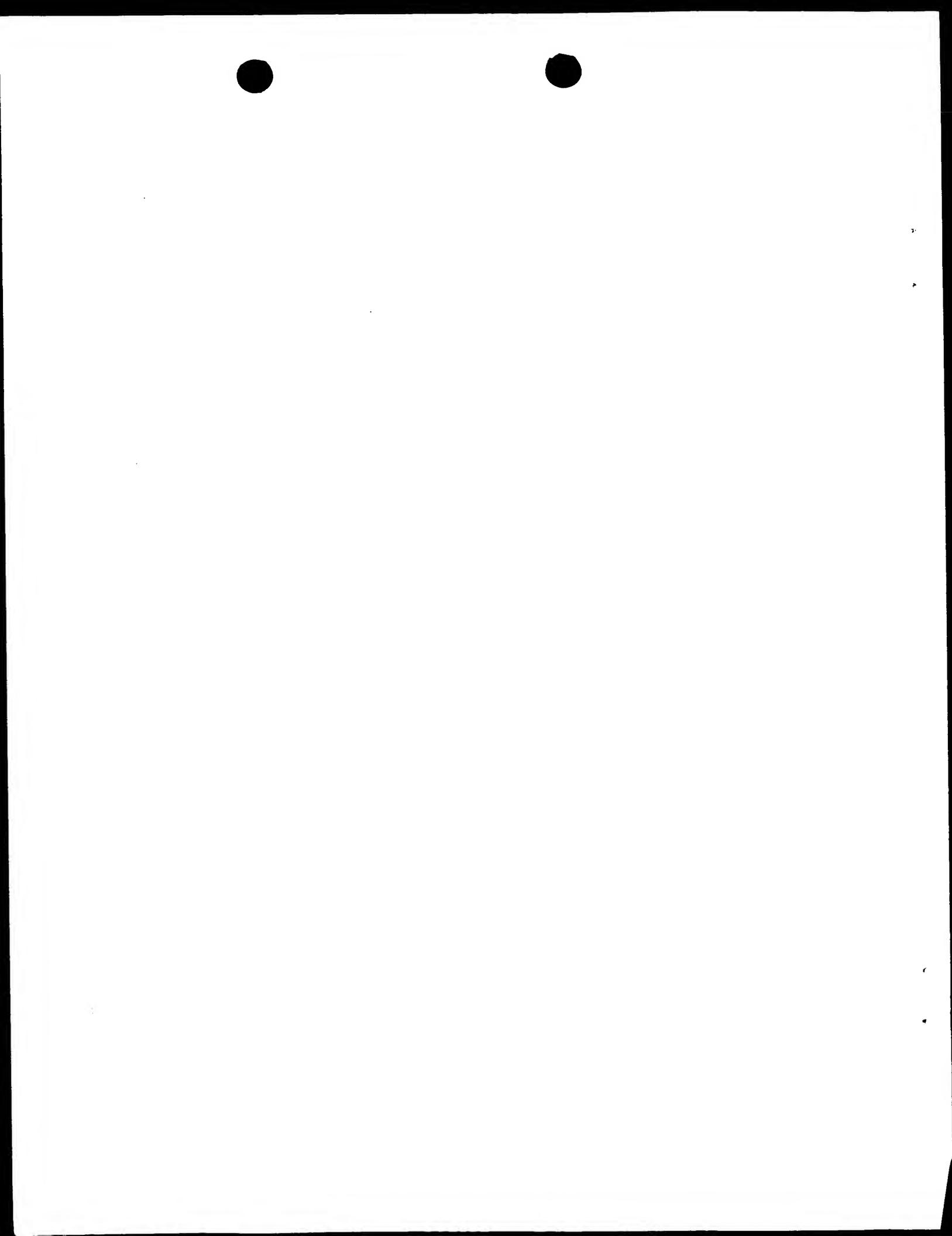
Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 27 June, 2000 (27.06.00)	Date of mailing of the international search report 11 July, 2000 (11.07.00)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPOO/03712

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' B29B17/00, C08J11/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' B29B17/00, C08J11/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1992-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2000年
日本国登録実用新案公報	1994-2000年
日本国実用新案登録公報	1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-287765, A (山菱工業株式会社) 27. 10月. 1998 (27. 10. 98) 段落番号【請求項1】、【請求項3】、【請求項4】、【0008】 (ファミリーなし)	1-3, 5-7
A	JP, 11-140222, A (豊田合成株式会社) 25. 05月. 1999 (25. 05. 99) 段落番号【請求項1】、【0013】 (ファミリーなし)	1-7
A	JP, 7-227846, A (ミクロ電子株式会社) 29. 08月. 1995 (29. 08. 95) 段落番号【請求項1】、【0001】、【0022】、【0023】 (ファミリーなし)	1-7

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 06. 00

国際調査報告の発送日

11.07.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

山田 泰之

印

4D 8720

電話番号 03-3581-1101 内線 6420

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 5-133514, A (ミクロ電子株式会社) 28.05月.1993(28.05.93) 段落番号【請求項1】，【請求項2】，【0025】，【0026】，【0027】 (ファミリーなし)	1-7
A	JP, 10-310662, A (株式会社豊田中央研究所) 24.11月.1998 (24.11.98) 段落番号【請求項1】，【0012】，【0013】 (ファミリーなし)	1-7